

# **Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)**

International application number: PCT/JP05/004179

International filing date: 10 March 2005 (10.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-075765  
Filing date: 17 March 2004 (17.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

11. 3. 2005

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

2004年 3月17日

出願番号  
Application Number:

特願2004-075765

パリ条約による外国への出願に用いる優先権の主張の基礎となる出願の国コードと出願番号  
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

J P 2004-075765

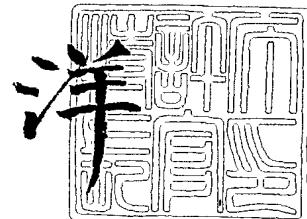
出願人  
Applicant(s):

渡邊 泉  
佐藤工業株式会社

2005年 4月20日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2005-3036140

**【書類名】** 特許願  
**【整理番号】** 04P025  
**【提出日】** 平成16年 3月17日  
**【あて先】** 特許庁長官 殿  
**【国際特許分類】**  
 B09C 1/10  
 A01G 7/00  
 A62D 3/00

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 東京都府中市幸町3丁目5番地8号 東京農工大学内  
**【氏名】** 渡邊 泉

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 東京都中央区日本橋本町4丁目12番20号 佐藤工業株式会社  
**【氏名】** 山田 僚一

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 東京都中央区日本橋本町4丁目12番20号 佐藤工業株式会社  
**【氏名】** 内多 肇嗣

**【特許出願人】**  
**【住所又は居所】** 東京都多摩市桜ヶ丘4丁目16番地2  
**【氏名又は名称】** 渡邊 泉

**【特許出願人】**  
**【識別番号】** 000172813  
**【住所又は居所】** 富山県富山市桜木町1番11号  
**【氏名又は名称】** 佐藤工業株式会社

**【代理人】**  
**【識別番号】** 100104927  
**【住所又は居所】** 東京都千代田区内神田1丁目6番7号 太陽ビル5階 和泉特許事務所  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 和泉 久志  
**【電話番号】** 03-5281-3700

**【手数料の表示】**  
**【予納台帳番号】** 053785  
**【納付金額】** 21,000円

**【提出物件の目録】**  
**【物件名】** 特許請求の範囲 1  
**【物件名】** 明細書 1  
**【物件名】** 要約書 1  
**【包括委任状番号】** 0215748

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

鉛及び／又はその化合物によって汚染された土壌に、シウウ酸を多く含有する植物種を播種、或いは幼苗を移植することにより栽培し、前記シウウ酸を多く含有する植物種に鉛及び／又は化合物を吸収・蓄積させた後、収穫・除去することを特徴とする鉛汚染土壌の浄化方法。

【請求項 2】

前記シウウ酸を多く含有する植物として、タデ科、カタバミ科、アカザ科、サトイモ科の植物のいずれかを又は組み合わせて用いる請求項1記載の鉛汚染土壌の浄化方法。

【請求項 3】

前記シウウ酸を多く含有する植物の根からシウウ酸、クエン酸、リンゴ酸などの有機酸の分泌を促進するために、苦土石灰その他のマグネシウム含有肥料を散布する請求項1、2いずれかに記載の鉛汚染土壌の浄化方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】鉛汚染土壌の浄化方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、植物によって重金属によって汚染された土壌の浄化を図る手法（ファイトレメディエーション）の内、特に鉛によって汚染された土壌の浄化を図る鉛汚染土壌の浄化方法に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、経済的及び環境に対する負荷などの問題から、新たな土壌汚染浄化技術として、重金属によって汚染された土壌に重金属を吸収・蓄積する植物を生育させ、この植物を収穫・除去することにより環境中の重金属を除去しようとする手法（ファイトレメディエーション）が注目されている。

【0003】

例えば、下記特許文献に示される各種のファイトレメディエーションが提案されている。

【0004】

下記特許文献1では、アオイ科フヨウ属に属する植物を重金属によって汚染された媒体上で栽培し、該重金属を吸収・蓄積させた後、該植物を収穫する浄化方法が提案されている。

【0005】

下記特許文献2では、アカザ科アカザ属、アカザ科ホウレンソウ属、アカザ科タヌキマメ属に属する植物を重金属によって汚染された媒体上で栽培し、該重金属を吸収・蓄積させた後、該植物を収穫する浄化方法が提案されている。

【0006】

下記特許文献3では、アオイ科トロロアオイ属に属する植物を重金属によって汚染された媒体上で栽培し、該重金属を吸収・蓄積させた後、該植物を収穫する浄化方法が提案されている。

【0007】

下記特許文献4では、土壌中の重金属を植物に吸収させ、該植物体内に蓄積させることにより、土壌を浄化する方法において、土壌中にL-グルタミン酸2酢酸を共存させるようにした土壌の浄化方法が提案されている。

【0008】

下記特許文献5では、重金属類含有土壌に、重金属類を吸収する能力を有し、生育特性が異なる少なくとも2種類以上の植物を組み合わせて植栽するようにした重金属類含有土壌の浄化方法が提案されている。

【0009】

さらに、下記特許文献6では、カドミウム等の金属類で汚染された土壌に配糖体系化合物型植物（アオキ類、タデ類、ソバ類、センブリ類）又はその他の化合物型植物（アシ類、シダ類、ヘビノネゴザ類、ススキ類）を栽培し、ある程度生育した後、上記植物を上記土壌より採取除去処理することにより、土壌中の重金属類を除去する汚染土壌の浄化方法が提案されている。

【特許文献1】特開2002-331281号公報

【特許文献2】特開2002-331282号公報

【特許文献3】特開2002-336837号公報

【特許文献4】特開2003-275741号公報

【特許文献5】特開2001-276801号公報

【特許文献6】特開昭57-190号公報

【非特許文献7】EDTA enhanced heavy metal phytoextraction:metal accumulation, leaching and toxicity(Plant and Soil 235:105-114, 2001)

**【非特許文献8】** Enhancement of phytoextraction of Zn, Cd, and Cu from Calcareous Soil: The Use of NTA and Sulfur Amendments (Environmental Science & Technology 34, 1778-1783, 2000)

**【発明の開示】**

**【発明が解決しようとする課題】**

**【0010】**

ところで、近年射撃場における鉛汚染が社会的な問題となっている。飛散した鉛散弾の鉛分が溶出し土壌汚染を引き起こしているとともに、この鉛成分が河川に流出し、生活水を汚染する問題が深刻化しており、射撃場の一部では鉛撤去のために一時閉鎖が相次いでいる。

**【0011】**

鉛を除去する方法としては、例えば汚染された土壌部分を掘削し、客土によって埋立する方法（客土埋立法）、セメント系固化材により地盤を固化し鉛成分を固形化する方法（地盤改良法）、微生物を用いたバイオレメディエーションなどが採用されている。

**【0012】**

しかし、前記客土埋立法の場合には、掘削及び埋立に多くの時間と手間が掛かる。前記地盤改良法の場合には、土壤環境が大きく変化するとともに、改良工事に膨大な費用と時間が掛かるなどの問題があった。さらに、微生物を用いたバイオレメディエーションの場合には、微生物の管理が困難であるとともに、鉛除去に対して実効性が小さいなどの問題があった。

**【0013】**

一方、上記植物によって重金属類による汚染土壌の浄化を図るファイトレメディエーションの場合には、経済的及び環境に対する負荷が少ないなどの理由によって有望視できるものの、上記特許文献1～6に開示された各ファイトレメディエーションは、主としてカドミウムや亜鉛などの重金属類を主たる対象とするものであり、特に除去対象を鉛とするものではなく、鉛に対してはその除去効果が小さいなどの問題があった。例えば、重金属類の浄化に利用される植物種としては、イネ科、キク科、マメ科などの植物が多いが、これらの植物種では鉛の吸収・蓄積は見られない。

**【0014】**

鉛は、重金属元素の中でも原子量が大きく、重金属類の中で特に重い元素であり、通常の土環境条件（物理的・化学的条件）下では、水に溶解し難い化学的特性を有する。鉛化合物で水に溶け易い塩は、硝酸鉛( $Pb(NO_3)_2$ )と酢酸鉛( $Pb(CH_3COO)_2$ )のみである。植物による重金属の浄化では、まず溶解性の形態に変化させ、根から吸収させることが重要であるが、鉛を対象とした場合には、前記のような化学特性から、植物根から吸収され難く、鉛を選択的にかつ効果的に吸収する植物は確認されていなかった。

**【0015】**

他方で、重金属類を植物に効果的に吸収・蓄積させるために、EDTAやクエン酸などの薬剤を溶化促進剤として土壌に混合することも行われている（上記非特許文献7、8参照）。しかしながら、これらの薬剤を土壌中に人工的に混合することは、EDTAの土壌中における生分解性が遅いため、永く土壌中に残存する虞があるとともに、他の陽イオン類と強く結合し、土壌が本来持つ機能を破壊したり、特性を変化させてしまう虞がある。また、キレート剤の散布によって鉛溶出量が数十倍になるため、排水処理を誤ると、かえって鉛汚染を拡散させる虞があるなどの問題があった。

**【0016】**

そこで本発明の主たる課題は、除去対象を鉛及びその化合物に限定し、特定の植物種を利用することによって格段の鉛除去効果が得られるようにするとともに、周辺環境の二次汚染を招くことが無い鉛汚染土壌の浄化方法を提供することにある。

**【課題を解決するための手段】**

**【0017】**

前記課題を解決するために本発明者等は鋭意研究を行った結果、シュウ酸を多く含有す

る植物種、具体的には、タデ科、カタバミ科、アカザ科、サトイモ科の植物は、根から分泌されるシュウ酸等の有機酸によって鉛を溶化し、効果的に根から吸収することができるとの知見を得るに至った。本発明はこの知見に基づくものである。

#### 【0018】

その結果、請求項1に係る本発明として、鉛及び／又はその化合物によって汚染された土壤に、シュウ酸を多く含有する植物種を播種、或いは幼苗を移植することにより栽培し、前記シュウ酸を多く含有する植物種に鉛及び／又は化合物を吸収・蓄積させた後、収穫・除去することを特徴とする鉛汚染土壤の浄化方法が提供される。

#### 【0019】

請求項2に係る本発明として、前記シュウ酸を多く含有する植物として、タデ科、カタバミ科、アカザ科、サトイモ科の植物のいずれかを又は組み合わせて用いる請求項1記載の鉛汚染土壤の浄化方法が提供される。

#### 【0020】

請求項3に係る本発明として、前記シュウ酸を多く含有する植物の根からシュウ酸、クエン酸、リンゴ酸などの有機酸の分泌を促進するために、苦土石灰その他のマグネシウム含有肥料を散布する請求項1、2いずれかに記載の鉛汚染土壤の浄化方法が提供される。

#### 【発明の効果】

#### 【0021】

以上詳説のとおり本発明によれば、シュウ酸を多く含有する植物種を利用し、ファイトレメディエーションを行うため、土壤中の鉛成分を効果的に根から吸収し、土壤から除去することが可能となる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0022】

以下、本発明の実施の形態について詳述する。

#### 【0023】

本鉛汚染土壤の浄化方法は、鉛及び／又はその化合物によって汚染された土壤に、シュウ酸を多く含有する植物種（以下、シュウ酸高含有植物という。）を播種、或いは幼苗を移植することにより栽培し、前記シュウ酸を多く含有する植物種に鉛及び／又は化合物を吸収・蓄積させた後、収穫・除去するものである。

#### 【0024】

前記シュウ酸高含有植物としては、イヌタデ、イタドリ、ギシギシに代表されるタデ科植物、カタバミに代表されるカタバミ科植物、シロザ、ホウレンソウなどに代表されるアカザ科植物、サトイモ、クワズイモなどに代表されるサトイモ科植物のいずれか又は組み合わせて用いることができる。前記カタバミ科 (Oxalidaceae)、タデ科 (Polygonaceae) の植物は、全草に可溶性シュウ酸カリウム（シュウ酸水素カリウム  $KHC_2O_4$ ）を10%程度、或いはそれ以上含有している。また、アカザ科 (Chenopodiaceae) の植物には可溶性のシュウ酸（シュウ酸ナトリウム  $(CO_2Na)_2$ ）が10%以上含有されている。

#### 【0025】

適用対象となる土壤は、鉛及び／又はその化合物によって汚染された土壤、具体的には射撃場などである。

#### 【0026】

シュウ酸や各種の有機酸（クエン酸、リンゴ酸など）は、植物根から分泌されることは一般に知られており、これらの有機酸類は、いずれも分子構造中にカルボキシル基を有するものである。

#### 【0027】

本発明では、シュウ酸高含有植物から分泌されるシュウ酸によって鉛及び／又はその化合物が水溶性の形態となり、植物根から吸収し体内に蓄積されることで、土壤中の鉛及び／又はその化合物が土壤中から除去される。

#### 【0028】

植物根から前記シュウ酸の分泌を促進させるには、肥料として一般的に用いられている

苦土石灰 ( $\text{CaCO}_3 \cdot \text{MgCO}_3$ ) を散布することで、植物自体の活性を高め、鉛及び／又はその化合物の吸収効率を高めることが可能となる。

#### 【0029】

前記苦土石灰は苦土（マグネシウム）を大量に含むドロマイド（苦灰岩：別名白雲母）から作られたもので、炭酸カルシウム（石灰成分）と同時に、炭酸マグネシウムも含み、植物の必須要素のひとつであるマグネシウムの補給のために施用される。また、わが国土壤で多い酸性土壌の中和効果も持つものであり、重要な土壤改良剤のひとつである。

#### 【0030】

また、前記苦土石灰を吸収促進剤として用いることの他の利点を列挙すれば下記のとおりである。

(1) 人工的に合成された薬品ではなく、一般的に土壤改良効果の高い肥料として用いられているものであること。

(2) 肥料効果により植物自体の活性が高まり、有機酸の分泌が図れること。

(3) 苦土石灰はアルカリ肥料であるため、土壤全体の鉛を可溶化させることはなく（重金属の多くはアルカリ性では不溶性を示す。）、シユウ酸等の有機酸の分泌によって根圏近傍のみを活性化させるものであり、土壤中の鉛を化学的に溶化するものではない。つまり、従来、用いられてきたEDTAやキレート剤などのように土壤中の重金属を強制的に溶化するものではないため、二次汚染を引き起こすことがない。

#### 【0031】

前記苦土石灰の散布によってシユウ酸の分泌が促進される理由は、植物自体の自己防御機能として、マグネシウム分の添加により、根の伸長を抑制するアルミニウムイオン害を無害とするためにシユウ酸の分泌が促進されること、及びアルカリ土壤では植物が必要とする鉄、リン酸などが溶け難く、根から吸収することができなくなるため、根からシユウ酸などの有機酸を分泌することによって根圏のpHを適性にして微量要素を吸収し易くするためと考えられる。従って、前記苦土石灰に代えて、マグネシウムを含有する肥料を使用することでもよい。

#### 【0032】

前述したシユウ酸高含有植物を鉛及び／又はその化合物を吸収するのに適した期間で栽培し、茎及び葉を含む植物の地上部ないし根を含む地下根を適当な方法で採取する。採取方法としては、例えば地上部のみを刈り取り、再び生育したら刈り取る繰り返しによって採取する方法、植物の地上部と地下根とを一緒に刈り取る方法など任意である。

#### 【0033】

刈り取った植物は、焼却、粉碎、融解処理等で処理した後、鉛を回収したり、その焼却灰は例えばコンクリート又は樹脂等により固化封入し無害化することができる。

#### 【実施例】

#### 【0034】

一時閉鎖した某射撃場を借用し、土壤中の鉛含有量が比較的一定しているフィールドを選定し、本発明に係る浄化方法で用いられる植物種として、イヌタデ（タデ科植物）、イタドリ（タデ科植物）、ギシギシ（タデ科植物）、カタバミ（カタバミ科植物）、シロザ（アカザ科植物）の5種を生育するとともに、比較例として、下表1に示す植物群を生育し、6ヶ月後に地上部及び地下根を一緒に収穫し、その鉛含有量を調べた。また、シユウ酸の分泌を促進するため、本発明に係る植物については苦土石灰を土壤面積換算で40g/ $\text{m}^2$ 散布した場合についても合わせて実験を行った。

#### 【0035】

【表1】

[実施例]

	イヌタデ	イタドリ	ギシギシ	カタバミ	シロザ	(mg/kg)
苦土石灰散布 無	600	580	220	650	1780	
〃 有	1300	3300	400	8500	16320	

[比較例]

(mg/kg)

キク科			マメ科			イネ科		
ヨモギ	ノコンギク	オオアレチノギク	ヤハズソウ	クズ	コマツナギ	ナルコビエ	ススキ	ミゾイコツナギ
3.60	1.90	2.25	2.32	8.92	6.05	3.00	2.73	1.46

## 【0036】

上記表1の結果より、本発明で使用されるシユウ酸高含有植物種の場合には、鉛の吸収・蓄積能力が他の植物と比較すると格段に高いことが判明している。また、シユウ酸高含有植物において、苦土石灰を散布した各ケースでは、さらに鉛吸収・蓄積効果が高いことが判る。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】鉛によって汚染された土壤を、植物によって浄化を図るファイトレメディエーションによって効果的に浄化する。

【解決手段】鉛及び／又はその化合物によって汚染された土壤に、シウウ酸を多く含有する植物種を播種、或いは幼苗を移植することにより栽培し、前記シウウ酸を多く含有する植物種に鉛及び／又は化合物を吸収・蓄積させた後、採取除去する。前記シウウ酸を多く含有する植物として、タデ科、カタバミ科、アカザ科、サトイモ科の植物のいずれかを又は組み合わせて用いる。更には、前記シウウ酸を多く含有する植物の根からシウウ酸、クエン酸、リンゴ酸などの有機酸の分泌を促進するために、苦土石灰その他のマグネシウム含有肥料を散布するようとする。

【選択図】なし

特願 2004-075765

出願人履歴情報

識別番号 [000172813]

1. 変更年月日 1990年 8月 7日

[変更理由] 新規登録

住所 富山県富山市桜木町1番11号  
氏名 佐藤工業株式会社

特願 2004-075765

出願人履歴情報

識別番号 [504104822]

1. 変更年月日 2004年 3月17日

[変更理由] 新規登録

住所 東京都多摩市桜ヶ丘4丁目16番地2  
氏名 渡邊 泉